

18. 5. 2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 3 年 1 2 月 2 6 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 3 - 4 3 2 5 6 6  
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 3 - 4 3 2 5 6 6]

REC'D 15 JUL 2004

WIPO

PCT

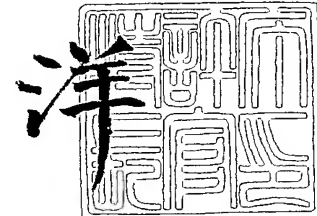
出 願 人  
Applicant(s): 株式会社ユーテック  
矢元 久良

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 7 月 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 KP3489  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H01L 21/31  
【発明者】  
    【住所又は居所】 千葉県流山市大字西平井 9 5 6 番地の 1 株式会社ユーテック内  
    【氏名】 矢元 久良  
【特許出願人】  
    【識別番号】 595152438  
    【氏名又は名称】 株式会社ユーテック  
【特許出願人】  
    【住所又は居所】 千葉県流山市大字西平井 9 5 6 番地の 1 株式会社ユーテック内  
    【氏名又は名称】 矢元 久良  
【代理人】  
    【識別番号】 100110858  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 柳瀬 睦肇  
【選任した代理人】  
    【識別番号】 100100413  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 渡部 温  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 085672  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 0116361

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

キャリアガス中に複数の原料溶液を微粒子状又は霧状に分散させる分散部と、  
前記分散部に前記複数の原料溶液を互いに分離して供給する複数の原料溶液通路と、  
前記分散部に前記キャリアガスを前記複数の原料溶液それぞれと互いに分離して供給するキャリアガス通路と、  
前記分散部で分散された前記原料溶液を気化する気化部と、  
前記気化部と前記分散部が繋げられ、前記分散部で分散された前記原料溶液が前記気化部に導入される細孔と、  
を具備することを特徴とする CVD 用気化器。

**【請求項 2】**

前記分散部は前記細孔と前記複数の原料溶液通路それぞれの先端との間に配置され、前記細孔は前記複数の原料溶液通路及び前記キャリアガス通路それぞれに比べて径が小さいことを特徴とする請求項 1 に記載の CVD 用気化器。

**【請求項 3】**

前記原料溶液を気化する時、前記気化部は減圧状態となり、前記分散部は加圧状態となることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の CVD 用気化器。

**【請求項 4】**

複数の原料溶液を互いに分離して供給する複数の原料溶液用配管と、  
前記複数の原料溶液用配管の外側を包むように配置され、加圧されたキャリアガスが前記複数の原料溶液用配管それぞれの外側に流されるキャリアガス用配管と、  
前記キャリアガス用配管の先端に設けられ、前記原料溶液用配管の先端から離隔された細孔と、  
前記キャリアガス用配管の先端に接続され、前記細孔によって該キャリアガス用配管の内部に繋がれた気化管と、  
前記気化管を加熱する加熱手段と、  
を具備することを特徴とする CVD 用気化器。

**【請求項 5】**

前記キャリアガス用配管内における前記細孔と前記複数の原料溶液用配管それぞれの先端との間において、前記キャリアガスと前記複数の原料溶液を混合して、該キャリアガス中に該複数の原料溶液を微粒子状又は霧状に分散させ、この分散させた微粒子状又は霧状の原料溶液が、前記細孔を通して前記気化管に導入され、前記加熱手段によって加熱されて気化されることを特徴とする請求項 4 に記載の CVD 用気化器。

**【請求項 6】**

前記細孔は前記複数の原料溶液用配管及び前記キャリアガス用配管それぞれの口径に比べて小さいことを特徴とする請求項 4 又は 5 に記載の CVD 用気化器。

**【請求項 7】**

前記複数の原料溶液は、 $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ を溶剤に混合したものと、 $\text{Bi}(\text{MMP})_3$ を溶剤に混合したものであり、前記キャリアガスはアルゴンガス又は窒素ガスであることを特徴とする請求項 1 乃至 6 のいずれか一項に記載の CVD 用気化器。

**【請求項 8】**

請求項 1 乃至 7 のいずれか一項に記載の CVD 用気化器を具備することを特徴とする溶液気化式 CVD 装置。

**【請求項 9】**

請求項 4 乃至 6 のいずれか一項に記載の CVD 用気化器と、  
前記気化管に接続された反応室と、  
を具備し、  
前記気化管で気化された原料溶液を用いて成膜することを特徴とする溶液気化式 CVD 装置。

**【請求項 1 0】**

複数の原料溶液及びキャリアガスそれぞれを互いに分離して分散部に供給し、該分散部で混合して前記キャリアガス中に前記複数の原料溶液を微粒子状又は霧状に分散させ、その直後に前記原料溶液を断熱膨張させて気化することを特徴とする C V D 用気化方法。

**【請求項 1 1】**

前記複数の原料溶液を混合した後 1 秒以内に微粒子状又は霧状に分散させることを特徴とする請求項 1 0 に記載の C V D 用気化方法。

## 【書類名】明細書

【発明の名称】CVD用気化器、溶液気化式CVD装置及びCVD用気化方法

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、CVD用気化器、溶液気化式CVD装置及びCVD用気化方法に係わり、特に、溶液配管等における目詰まりを抑制して連続使用時間を長くしたCVD用気化器、CVD用気化方法及び前記CVD用気化器を用いた溶液気化式CVD装置に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

1970年頃から半導体産業に導入採用されたCVD(chemical vapor deposition)技術においては、薄膜材料を形成する場合、ガス状態の反応材料をリアクタに流して、化学反応を起こし、シリコン等半導体基板上に様々な組成の薄膜材料を形成する。しかし、ガス状の反応材料が用意できなければ、CVD法によって、薄膜を形成する事ができない、というCVD技術の限界があった。

## 【0003】

1987年のIEDMにおいて、W.I.KINNEY et alが、強誘電体材料(PZT, SBT等)の分極現象を用いて、高速不揮発性メモリFeRAMを作成する技術を発表した。当時は、Zr, Sr, Biを含有するガス状ケミカルを作製できなかったため、強誘電体材料PZT, SBT等の薄膜をCVD法によって作成する事が出来なかった。このため、フォトリソスト薄膜形成と同様のプロセスである、溶液塗布法がその作成に採用されてきた。溶液塗布法によって作製された強誘電体材料薄膜(膜厚400-300nm)は、段差被覆性が悪く、薄膜化(膜厚150-40nm)するとピンホールが増加して電気絶縁性が低下する等の問題があった。段差が多く、強誘電体材料の薄膜化(膜厚100-50nm)が必須であるFeRAM-LSIの実用化を図るには、高品質強誘電体薄膜をCVD法でもって作製する技術が必須である。

## 【0004】

1992年になって京都大学・工学部の塩崎助教授は、世界で初めて、強誘電体薄膜PZTをCVD法でもって作製し、学会に発表した。この時、塩崎助教授が採用したCVD装置は、固体ケミカルを昇華させてガス化する方法を採用している。

## 【0005】

しかし、固体ケミカルを昇華させてガス化する方法には次のような問題がある。固体ケミカルを昇華させる際の昇華速度が遅いため、反応物質の流量を増加させることが困難であり、また反応物質の流量制御が困難であるから、薄膜の堆積速度が小さく、再現性が悪かった。また昇華させたケミカルを約250℃に加熱した配管を用いて、反応炉まで運ぶ事が困難であった。

## 【0006】

本発明者は、塩崎助教授の発表技術を追試するため塩崎助教授の支援を受けて、塩崎助教授が採用した装置を、塩崎助教授と同じ装置メーカーから購入し、成膜試験を行った。しかし、運転開始直後に高温配管が目詰まりした。これの修理直後、今度は高温配管部が異常に過熱されてしまった。このような経験から、配管途中に複数のバルブが設置してある細く長い(1/4インチ外形、長さ1m×数本)ステンレス配管を、250±5℃程度の高温に均一に加熱する事は、極めて困難な技術であると結論した。

## 【0007】

本発明者は、上記の経験から昇華式CVD装置を実用化する事は困難と結論した。そこで、溶液気化式CVD法(所謂Flash CVD法)を採用することによって、強誘電体材料SBTの高品質薄膜を成膜することに世界で初めて成功した。これを国際学会ISIF'96("Performance of SrBi2Ta2O9 Thin Films Grown by Chemical Vapor Deposition for Nonvolatile Memory Applications".C.Isobe,H.Yamato,H.yagi et al,9<sup>th</sup> International Symposium on Integrated Ferroelectrics.Mar.1996)に発表して、高速不揮発性メモリFeRAM-LSIの商品化の可能性を世界で初めて実証した。

## 【0008】

固体材料を溶媒に溶解して溶液を作製し、この溶液を高温でガス化して、S B T 薄膜合成反応に必要な反応ガスを作製する気化器は、当初、アメリカ A T M I 製を採用した。しかし、この気化器は、十数時間で、目詰まりするため、量産用 C V D 装置の気化器には採用出来なかった。そのため、本発明者は、1996年に、島津製作所・吉岡氏や山形大学・工学部・物質工学科・都田教授に対して、高品質 S B T 薄膜を安定して成膜するために必要な、高性能溶液供給制御系と高性能気化器の開発と製造を、注文した。しかし開発納入された装置（溶液供給制御装置と気化器）には以下のような問題があり、S B T 薄膜を安定して成膜する事ができなかった。尚、この装置（溶液供給制御装置と気化器）は特許文献1（特開2000-216150号公報）及び特許文献2（特開2002-105646号公報）に開示されている。

#### 【0009】

S B T 薄膜を合成するための反応物質は、 $\text{Sr}(\text{DPM})_2$ ,  $\text{BiPh}_3$ ,  $\text{Ta}(\text{OEt})_5$ ,  $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ ,  $\text{Bi}(\text{OtAm})_3$ ,  $\text{Bi}(\text{MMP})_3$ 等が採用されるが、特に $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2 + \text{Bi}(\text{MMP})_3$ を用いると、320～420℃の低温で高速堆積（5～100nm/min）が可能であり、優れた段差被覆性と優れた電気特性を示す高品質のS B T 薄膜を形成する事ができる。しかし、上記装置（溶液供給制御系と気化器）では、反応ケミカルに $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2 + \text{Bi}(\text{MMP})_3$ を用いると、装置が短時間で目詰まりしてしまう。その原因を調査・考察してみたところ、原因は、 $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2 + \text{Bi}(\text{MMP})_3$ の溶液を室温で混合すると $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ と $\text{Bi}(\text{MMP})_3$ が反応して、溶解度が小さく、かつ昇華し難い物質が合成されるために溶液を流す流路や気化管先端が目詰まりする事であると判明した。以下、これらについて詳細に説明する。

#### 【0010】

図4は、 $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ のTG CHART (Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。この図は、圧力が760 Torr、流量が100ml/分のアルゴン雰囲気中で $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ の試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ101と、圧力が10 Torr、流量が50ml/分のアルゴン雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ102と、圧力が760 Torr、流量が100ml/分の酸素雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ103を示している。この図から、 $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ は、アルゴン雰囲気中で10 Torrの圧力下において、約220℃で完全に昇華する事が分かる。

#### 【0011】

図5は、 $\text{Bi}(\text{OtAm})_3$ のTG CHART (Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。この図は、圧力が760 Torr、流量が100ml/分のアルゴン雰囲気中で $\text{Bi}(\text{OtAm})_3$ の試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ111と、圧力が10 Torr、流量が50ml/分のアルゴン雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ112と、圧力が760 Torr、流量が100ml/分の酸素雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ113を示している。この図から、 $\text{Bi}(\text{OtAm})_3$ は、アルゴン雰囲気中で10 Torrの圧力下において、約130℃で、約98%程度昇華する事がわかる。

#### 【0012】

図6は、 $\text{Bi}(\text{MMP})_3$ のTG CHART (Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。この図は、圧力が760 Torr、流量が100ml/分のアルゴン雰囲気中で $\text{Bi}(\text{MMP})_3$ の試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ121と、圧力が10 Torr、流量が50ml/分のアルゴン雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ122と、圧力が760 Torr、流量が100ml/分の酸素雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示す

すグラフ123を示している。この図から、 $\text{Bi}(\text{MMP})_3$ は、アルゴン雰囲気で10 Torrの圧力下において、約150℃で、完全に昇華する事が分かる。

#### 【0013】

図7は、 $\text{Bi}(\text{OtAm})_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_6]_2$ 混合体のTG CHART (Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。この図は、圧力が760 Torr、流量が100 ml/分のアルゴン雰囲気中で $\text{Bi}(\text{OtAm})_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_6]_2$ 混合体の試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ131と、圧力が760 Torr、流量が100 ml/分の酸素雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ133を示している。この図から $\text{Bi}(\text{OtAm})_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_6]_2$ 混合体は、アルゴン雰囲気下で300℃以上まで加熱しても80%程度しか昇華しない事が分かる。

#### 【0014】

以上のことから、 $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ と、 $\text{Bi}(\text{OtAm})_3$ は、単体ではほぼ100%昇華するが、混合すると、昇華しない部分が生じている。この悪化した昇華特性が、気化器の目詰まりを招くと考えられる。

#### 【0015】

昇華特性悪化の原因は、図8に示すNMR (Hの核磁気共鳴) 特性から分かる。

$\text{Bi}(\text{OtAm})_3$ と $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_6]_2$ を混合すると、新たなNMR特性が観察されるようになり新たな化合物が形成され存在する事を示している。

#### 【0016】

図9は、 $\text{Bi}(\text{MMP})_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ 混合体のTG CHART (Ar 760Torr)を示す図である。この図は、圧力が760 Torr、流量が100 ml/分のアルゴン雰囲気中で $\text{Bi}(\text{MMP})_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ 混合体の試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフである。この図から、 $\text{Bi}(\text{MMP})_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ 混合体も、80%程度しか昇華しなくなる事が分かる。

#### 【0017】

図10は、 $\text{BiPh}_3$ のTG CHART (Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。この図は、圧力が760 Torr、流量が100 ml/分のアルゴン雰囲気中で $\text{BiPh}_3$ の試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ141と、圧力が10 Torr、流量が50 ml/分のアルゴン雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ142と、圧力が760 Torr、流量が100 ml/分の酸素雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ143を示している。この図から $\text{BiPh}_3$ は、約200℃で100%昇華する事が分かる。

#### 【0018】

図11は、 $\text{BiPh}_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_6]_2$ 混合体のTG CHART (Ar 760, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。この図は、圧力が760 Torr、流量が100 ml/分のアルゴン雰囲気中で $\text{BiPh}_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_6]_2$ 混合体の試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ151と、圧力が760 Torr、流量が100 ml/分の酸素雰囲気中で前記試料を30℃から600℃まで10℃/分の昇温速度で昇温させた場合の試料重量の変化を示すグラフ153を示している。この図から $\text{BiPh}_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_6]_2$ 混合体は、約280℃でほぼ100%昇華する事が分かる。

#### 【0019】

図12は、Mixing Stability of  $\text{BiPh}_3$  &  $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_6]_2$  (NMR) 特性を示す図である。この図からは、 $\text{BiPh}_3/\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_6]_2$ 混合体には、新たな物質の合成が見られない。

図13は、 $\text{BiPh}_3$  TG-DTA CHART (O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。この図に示すように、 $\text{BiPh}_3$ の酸化反応は、465℃で起きる。これは、 $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ の259℃、 $\text{Bi}(\text{MMP})_3$ の209℃、 $\text{Bi}(\text{OtAm})_3$ の205℃に比べて、酸化温度が高すぎるので、採用が困難である事が分かる。

## 【0020】

Bi(OtAm)<sub>3</sub>は、僅か180ppmの水分によって、加水分解反応が起きる。これは、Sr[Ta(OEt)<sub>5</sub>(OEtOMe)]<sub>2</sub>が1650ppmの水分によって、Bi(MMP)<sub>3</sub>が1170ppmの水分によって加水分解反応が起きるのに比べて、桁違いに水分に敏感であり、Bi(OtAm)<sub>3</sub>の取り扱いが難しい事を示している。水分は必ず存在するので、水分とBi(OtAm)<sub>3</sub>が反応し、作製されたBi酸化物が配管や流量計を目詰まりさせる可能性が高くなる。

## 【0021】

【特許文献1】特開2000-216150号公報（第76～第78段落、第145～第167段落、図3、図8）

【特許文献2】特開2002-105646号公報（第13～第14段落、図2）

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0022】

前述した従来技術の問題点を纏めると下記のようになる。

室温で固体のケミカルを昇華させてガス化し、これをCVD用反応ガスに用いる技術は、薄膜堆積速度が遅く、ばらつく等の問題があり、実用化は困難と考えられる。

また、室温で固体のケミカルを用いて、これを溶媒に溶解させ、霧化して、次に高温で気化させる技術である溶液気化式CVD法は、堆積速度が速いが、溶液状態で化学反応が生じる現象があり、溶液配管等を目詰まりさせる問題がある。溶液配管等が目詰まりするとCVD装置を短時間でしか連続使用することができない。従って、溶液供給系に工夫を施す必要がある。

## 【0023】

本発明は上記のような事情を考慮してなされたものであり、その目的は、溶液配管等における目詰まりを抑制して連続使用時間を長くしたCVD用気化器、溶液気化式CVD装置及びCVD用気化方法を提供することにある。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0024】

上記課題を解決するため、本発明に係るCVD用気化器は、キャリアガス中に複数の原料溶液を微粒子状又は霧状に分散させる分散部と、

前記分散部に前記複数の原料溶液を互いに分離して供給する複数の原料溶液通路と、

前記分散部に前記キャリアガスを前記複数の原料溶液それぞれと互いに分離して供給するキャリアガス通路と、

前記分散部で分散された前記原料溶液を気化する気化部と、

前記気化部と前記分散部が繋げられ、前記分散部で分散された前記原料溶液が前記気化部に導入される細孔と、

を具備することを特徴とする。

## 【0025】

上記CVD用気化器によれば、複数の原料溶液通路を設けているため、複数の原料溶液を互いに分離して分散部に供給することができる。これにより、複数の原料溶液が溶液状態で化学反応を起こすことを防止でき、原料溶液通路内部で目詰まりすることを防止できる。

## 【0026】

また、本発明に係るCVD用気化器において、前記分散部は前記細孔と前記複数の原料溶液通路それぞれの先端との間に配置され、前記細孔は前記複数の原料溶液通路及び前記キャリアガス通路それぞれに比べて径が小さいことが好ましい。

## 【0027】

また、本発明に係るCVD用気化器において、前記原料溶液を気化する時、前記気化部は減圧状態となり、前記分散部は加圧状態となることが好ましい。

## 【0028】

本発明に係るCVD用気化器は、複数の原料溶液を互いに分離して供給する複数の原料



溶液用配管と、

前記複数の原料溶液用配管の外側を包むように配置され、加圧されたキャリアガスが前記複数の原料溶液用配管それぞれの外側に流されるキャリアガス用配管と、

前記キャリアガス用配管の先端に設けられ、前記原料溶液用配管の先端から離隔された細孔と、

前記キャリアガス用配管の先端に接続され、前記細孔によって該キャリアガス用配管の内部に繋がれた気化管と、

前記気化管を加熱する加熱手段と、

を具備することを特徴とする。

#### 【0029】

上記CVD用気化器によれば、複数の原料溶液用配管を設けているため、複数の原料溶液を互いに分離して分散部に供給することができる。これにより、複数の原料溶液が溶液状態で化学反応を起こすことを防止でき、原料溶液通路内部で目詰まりすることを防止できる。また、複数の原料溶液用配管の外部をキャリアガス用配管で包み、原料溶液用配管とキャリアガス用配管との隙間にキャリアガスを流す構造を採用し、その下流側に断熱膨張させる気化管を設けている。つまり、原料溶液用配管の外側の前記隙間に加圧されたキャリアガスを流すため、原料溶液用配管及びキャリアガス用配管において温度上昇を抑制することができる。従って、細孔と原料溶液用配管の先端との間において原料溶液中の溶剤のみが気化することを抑制できるため、原料溶液が化学反応を起こすことを抑制でき、細孔及びその付近で目詰まりすることを抑制できる。

#### 【0030】

また、本発明に係るCVD用気化器においては、前記キャリアガス用配管内における前記細孔と前記複数の原料溶液用配管それぞれの先端との間において、前記キャリアガスと前記複数の原料溶液を混合して、該キャリアガス中に該複数の原料溶液を微粒子状又は霧状に分散させ、この分散させた微粒子状又は霧状の原料溶液が、前記細孔を通して前記気化管に導入され、前記加熱手段によって加熱されて気化されるものである。これにより、細孔や細孔付近の気化管において原料溶液中の溶剤のみが気化することを抑制できるため、原料溶液が化学反応を起こすことを抑制でき、目詰まりすることを抑制できる。

#### 【0031】

また、本発明に係るCVD用気化器において、前記細孔は前記複数の原料溶液用配管及び前記キャリアガス用配管それぞれの口径に比べて小さいことが好ましい。

#### 【0032】

また、本発明に係るCVD用気化器において、前記複数の原料溶液は、 $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ を溶剤に混合したものと、 $\text{Bi}(\text{MMP})_3$ を溶剤に混合したものであり、前記キャリアガスはアルゴンガス又は窒素ガスであることも可能である。

#### 【0033】

本発明に係る溶液気化式CVD装置は、前記のCVD用気化器のいずれかを具備することを特徴とする。

#### 【0034】

本発明に係る溶液気化式CVD装置は、前記のいずれかのCVD用気化器と、

前記気化管に接続された反応室と、

を具備し、

前記気化管で気化された原料溶液を用いて成膜することを特徴とする。

#### 【0035】

本発明に係るCVD用気化方法は、複数の原料溶液及びキャリアガスそれぞれを互いに分離して分散部に供給し、該分散部で混合して前記キャリアガス中に前記複数の原料溶液を微粒子状又は霧状に分散させ、その直後に前記原料溶液を断熱膨張させて気化することを特徴とする。

#### 【0036】

また、本発明に係るCVD用気化方法においては、前記複数の原料溶液を混合した後1

秒以内に微粒子状又は霧状に分散させることが好ましい。これにより、分散部において原料溶液中の溶剤のみが気化することを抑制できるため、分散部で原料溶液が化学反応を起こすことを抑制でき、分散部や細孔で目詰まりすることを抑制できる。

【発明の効果】

【0037】

以上説明したように本発明によれば、溶液配管等における目詰まりを抑制して連続使用時間を長くしたCVD用気化器、溶液気化式CVD装置及びCVD用気化方法を提供することができる。

【発明を実施するための形態】

【0038】

以下、図面を参照して本発明の実施の形態について説明する。

(実施の形態1)

図1(a)は、本発明の実施の形態1によるCVD用気化器の溶液供給系を模式的に示す構成図であり、図1(b)は、CVD用気化器の溶液供給系、分散部及び気化部を模式的に示す断面図である。

【0039】

図1(a), (b)に示すように、CVD用気化器は第1及び第2の原料溶液用配管1, 2を有している。第1の原料溶液用配管1は第2の原料溶液用配管2に隣接して平行に配置されている。第1及び第2の原料溶液用配管1, 2の外側にはキャリアガス用配管3が配置されている。キャリアガス用配管3の内径は第1の原料溶液用配管1の外径と第2の原料溶液用配管2の外径との和より大きく形成されている。つまり、第1及び第2の原料溶液用配管1, 2はキャリアガス用配管3の内部に挿入されており、第1及び第2の原料溶液用配管1, 2を包むようにキャリアガス用配管3が形成されている。

【0040】

第1の原料溶液用配管1の基端側はケミカル1及び溶剤を供給する第1の供給機構4に接続されている。第1の供給機構4はケミカル(例えば $\text{Sr}[\text{Ta}(\text{OEt})_5(\text{OEtOMe})]_2$ )1を供給する供給源と溶剤を供給する供給源を有している。ケミカル1の供給源と第1の原料溶液用配管1との間にはバルブ6及びマスフローコントローラー(図示せず)が設けられている。前記溶剤の供給源と第1の原料溶液用配管1との間にはバルブ7及びマスフローコントローラー(図示せず)が設けられている。また、前記溶剤の供給源と第1の原料溶液用配管1との間で溶剤とケミカル1が合流(混合)するようになっている。

【0041】

第2の原料溶液用配管2の基端側はケミカル2及び溶剤を供給する第2の供給機構5に接続されている。第2の供給機構5はケミカル(例えば $\text{Bi}(\text{MMP})_3$ )2を供給する供給源と溶剤を供給する供給源を有している。ケミカル2の供給源と第2の原料溶液用配管2との間にはバルブ8及びマスフローコントローラー(図示せず)が設けられている。前記溶剤の供給源と第2の原料溶液用配管2との間にはバルブ9及びマスフローコントローラー(図示せず)が設けられている。また、前記溶剤の供給源と第2の原料溶液用配管2との間で溶剤とケミカル2が合流(混合)するようになっている。

【0042】

キャリアガス用配管3の基端側はアルゴンガス及び窒素ガスを供給する第3の供給機構12に接続されている。第3の供給機構12はアルゴンガス( $\text{Ar}$ )を供給する供給源と窒素ガス( $\text{N}_2$ )を供給する供給源を有している。アルゴンガスの供給源とキャリアガス用配管3との間にはバルブ10及びマスフローコントローラー(図示せず)が設けられている。窒素ガスの供給源とキャリアガス用配管3との間にはバルブ11及びマスフローコントローラー(図示せず)が設けられている。

【0043】

キャリアガス用配管3の先端には気化管13の一端が接続されている。キャリアガス用配管3の先端には細孔が設けられており、この細孔によってキャリアガス用配管3の内部

と気化管 13 の内部が繋げられている。また、気化管 13 の周囲にはヒーターが設けられており、このヒーターによって気化管 13 を例えば 270℃程度に加熱するようになっている。また、気化管 13 の他端は図示せぬ反応室に接続されている。

#### 【0044】

第 1 及び第 2 の原料溶液用配管 1, 2 それぞれの先端は前記細孔から離間されている。即ち、キャリアガス用配管 3 内における第 1 及び第 2 の原料溶液用配管 1, 2 それぞれの先端と前記細孔との間には分散部 14 が設けられている。この分散部 14 は、第 1 の原料溶液用配管 1 の先端から流れ出る第 1 の原料溶液（ケミカル 1 と溶剤を混合したもの）、第 2 の原料溶液用配管 2 の先端から流れ出る第 2 の原料溶液（ケミカル 2 と溶剤を混合したもの）、及びキャリアガス用配管 3 から流れ出るアルゴンガス又は窒素ガスを混合して、アルゴンガス中又は窒素ガス中に第 1 及び第 2 の原料溶液それぞれを微粒子状又は霧状に分散させるものである。

#### 【0045】

次に、上記 CVD 用気化器の動作について説明する。

まず、バルブ 6 を開けて第 1 の供給機構 4 から第 1 の原料溶液を所定の流量及び所定の圧力で第 1 の原料溶液用配管 1 に供給する。第 1 の原料溶液は例えば  $Sr[Ta(OEt)_5(OEtOMe)]_2$  と溶剤を混合したものである。また、バルブ 8 を開けて第 2 の供給機構 5 から第 2 の原料溶液を所定の流量及び所定の圧力で第 2 の原料溶液用配管 2 に供給する。第 2 の原料溶液は例えば  $Bi(MMP)_3$  と溶剤を混合したものである。また、バルブ 10, 11 を開けて第 3 の供給機構 12 からキャリアガスを所定の流量及び圧力でキャリアガス用配管 3 に供給する。キャリアガスは例えばアルゴンガス又は窒素ガスである。ヘリウムガス等も採用する事ができる。

#### 【0046】

次いで、第 1 の原料溶液は第 1 の原料溶液用配管 1 を通って分散部 14 に供給され、第 2 の原料溶液は第 2 の原料溶液用配管 2 を通って分散部 14 に供給され、加圧されたキャリアガスはキャリアガス用配管 3 を通って分散部 14 に供給される。そして分散部 14 において、第 1 及び第 2 の原料溶液とキャリアガスが混合され、キャリアガス中に第 1 及び第 2 の原料溶液それぞれが微粒子状又は霧状に分散される。第 1 及び第 2 の原料溶液が分散部 14 で混合された時から微粒子状又は霧状に分散されるまでは 1 秒以内であることが好ましい。

#### 【0047】

次いで、分散部 14 でキャリアガス中に分散された第 1 及び第 2 の原料溶液は細孔を通して気化管 13 に導入される。気化管 13 において、分散され霧化した第 1 及び第 2 の原料溶液は、ヒーターによって瞬時に約 270℃に加熱され気化する。分散部 14 内の圧力と気化管 13 内の圧力とは大きな差がある。気化管 13 内は減圧下であり、分散部 14 内は加圧下である。気化管 13 内の圧力は例えば 5～30 Torr であるのに対し、分散部 14 内の圧力は例えば 1500～2200 Torr である。このような圧力差を設けることにより、キャリアガスは、超高速で気化管に噴出し、断熱膨張する。第 1 及び第 2 の原料溶液は、高速のキャリアガス流によって、分散部 14 で分散させた直後 微細な霧になるために瞬時に気化管 13 内で気化する。

#### 【0048】

このようにして CVD 用気化器で第 1 及び第 2 の原料溶液を気化して原料ガスを形成する。この原料ガスが気化管 13 を通って反応室に送られ、この反応室で CVD 法によって薄膜が成膜される。

#### 【0049】

上記実施の形態 1 によれば、第 1 及び第 2 の原料溶液用配管 1, 2 を互いに隣接して平行に配置し、これらの配管 1, 2 の外側にキャリアガス用配管 3 を配置することにより、第 1 の原料溶液（ $Sr[Ta(OEt)_5(OEtOMe)]_2$ ）と第 2 の原料溶液（ $Bi(MMP)_3$ ）を互いに分離して分散部 14 に供給することができる。これにより、第 1 の原料溶液と第 2 の原料溶液が溶液状態で化学反応を起こすことを防止でき、配管内部で

目詰まりすることを防止できる。よって、CVD用気化器の連続使用時間を長くすることができる。

#### 【0050】

また、本実施の形態では、第1及び第2の原料溶液用配管1, 2それぞれの外部をより大口径のキャリアガス用配管3で包み、原料溶液用配管1, 2とキャリアガス用配管3との隙間にキャリアガスを流す構造を採用し、その下流側に高温気化管を設けている。原料溶液用配管1, 2の外側の前記隙間に加圧されたキャリアガスを高速で流すため（例えばキャリアガスは、4気圧で200ml/min. ~ 2L/min）、第1及び第2の原料溶液用配管1, 2、キャリアガス用配管3及び分散部14において温度上昇を抑制することができる。従って、原料溶液配管1, 2及び分散部14において原料溶液中の溶剤のみが蒸発気化することを抑制できるため、原料溶液配管1, 2及び分散部14で原料溶液が高濃度化し、粘度の上昇や溶解度を越えて析出する現象を起こすことを抑制でき、原料溶液配管1, 2及び分散部14や細孔で目詰まりすることを抑制できる。

#### 【0051】

また、本実施の形態では、分散部14でキャリアガスに第1及び第2の原料溶液を混合させた直後（1秒以内）に微粒子状又は霧状に分散させることにより、分散部14で原料溶液が化学反応を起こすことを抑制でき、分散部14や細孔で目詰まりすることを抑制できる。よって、CVD用気化器の連続使用時間を長くすることができる。

#### 【0052】

また、本実施の形態では、第1及び第2の原料溶液を分散部14で分散させ、この分散させた微粒子状又は霧状の原料溶液を気化管13内で加熱して瞬時に気化（ガス化）させることができる。従って、細孔や細孔付近の気化管13において原料溶液中の溶剤のみが気化することを抑制できるため、細孔や細孔付近の気化管で原料溶液が化学反応を起こすことを抑制でき、細孔や細孔付近の気化管で目詰まりすることを抑制できる。よって、CVD用気化器の連続使用時間を長くすることができる。

#### 【0053】

上述したように本実施の形態では、配管1~3、分散部14、細孔及び気化管で目詰まりすることを抑制することにより、CVD用気化器を安定して長時間連続使用することが可能となる。従って、強誘電体材料PZT、SBT等の薄膜を再現性及び制御性良く成膜することができ、CVD用気化器及び溶液気化式CVD装置の高性能化を実現できる。

#### 【0054】

（実施の形態2）

図1（c）は、本発明の実施の形態2によるCVD用気化器の溶液供給系を模式的に示す構成図であり、図1（a）と同一部分には同一符号を付し、異なる部分についてのみ説明する。

#### 【0055】

図1（c）に示すCVD用気化器は、3つの原料溶液を分散部に供給する3つの配管1, 2, 15を有している。つまり、第1の原料溶液用配管1と第2の原料溶液用配管2と第3の原料溶液用配管15は互いに隣接して平行に配置されている。第1乃至第3の原料溶液用配管1, 2, 15の外側にはキャリアガス用配管3が配置されている。即ち、第1乃至第3の原料溶液用配管1, 2, 15はキャリアガス用配管3の内部に挿入されており、第1乃至第3の原料溶液用配管1, 2, 15を包むようにキャリアガス用配管3が形成されている。

#### 【0056】

第3の原料溶液用配管15の基端側はケミカル3及び溶剤を供給する第3の供給機構（図示せず）に接続されている。第3の供給機構はケミカル3を供給する供給源と溶剤を供給する供給源を有している。ケミカル3の供給源と第3の原料溶液用配管15との間にはバルブ（図示せず）及びマスフローコントローラー（図示せず）が設けられている。前記溶剤の供給源と第3の原料溶液用配管15との間にはバルブ（図示せず）及びマスフローコントローラー（図示せず）が設けられている。また、前記溶剤の供給源と第3の原料溶

液用配管 15 との間で溶剤とケミカル 3 が合流（混合）するようになっている。

【0057】

第 1 乃至第 3 の原料溶液用配管 1, 2, 15 それぞれの先端は細孔から離間されている。即ち、キャリアガス用配管 3 内における第 1 乃至第 3 の原料溶液用配管 1, 2, 15 それぞれの先端と前記細孔との間には分散部が設けられている。この分散部は、第 1 の原料溶液用配管 1 の先端から流れ出る第 1 の原料溶液（ケミカル 1 と溶剤を混合したもの）、第 2 の原料溶液用配管 2 の先端から流れ出る第 2 の原料溶液（ケミカル 2 と溶剤を混合したもの）、第 3 の原料溶液用配管 15 の先端から流れ出る第 3 の原料溶液（ケミカル 3 と溶剤を混合したもの）、及びキャリアガス用配管 3 から流れ出るアルゴンガス又は窒素ガスを混合して、アルゴンガス中又は窒素ガス中に第 1 乃至第 3 の原料溶液それぞれを微粒子状又は霧状に分散させるものである。

【0058】

上記実施の形態 2 においても実施の形態 1 と同様の効果を得ることができる。

【0059】

（実施の形態 3）

図 1（d）は、本発明の実施の形態 3 による CVD 用気化器の溶液供給系を模式的に示す構成図であり、図 1（c）と同一部分には同一符号を付し、異なる部分についてのみ説明する。

【0060】

図 1（d）に示す CVD 用気化器は、4 つの原料溶液を分散部に供給する 4 つの配管 1, 2, 15, 16 を有している。つまり、第 1 の原料溶液用配管 1 と第 2 の原料溶液用配管 2 と第 3 の原料溶液用配管 15 と第 4 の原料溶液用配管 16 は互いに隣接して平行に配置されている。第 1 乃至第 4 の原料溶液用配管 1, 2, 15, 16 の外側にはキャリアガス用配管 3 が配置されている。即ち、第 1 乃至第 4 の原料溶液用配管はキャリアガス用配管 3 の内部に挿入されており、第 1 乃至第 4 の原料溶液用配管を包むようにキャリアガス用配管 3 が形成されている。

【0061】

第 4 の原料溶液用配管 16 の基端側はケミカル 4 及び溶剤を供給する第 4 の供給機構（図示せず）に接続されている。第 4 の供給機構はケミカル 4 を供給する供給源と溶剤を供給する供給源を有している。ケミカル 4 の供給源と第 4 の原料溶液用配管 16 との間にはバルブ（図示せず）及びマスフローコントローラー（図示せず）が設けられている。前記溶剤の供給源と第 4 の原料溶液用配管 16 との間にはバルブ（図示せず）及びマスフローコントローラー（図示せず）が設けられている。また、前記溶剤の供給源と第 4 の原料溶液用配管 16 との間で溶剤とケミカル 4 が合流（混合）するようになっている。

【0062】

第 1 乃至第 4 の原料溶液用配管 1, 2, 15, 16 それぞれの先端は細孔から離間されている。即ち、キャリアガス用配管 3 内における第 1 乃至第 4 の原料溶液用配管それぞれの先端と前記細孔との間には分散部が設けられている。この分散部は、第 1 の原料溶液用配管 1 の先端から流れ出る第 1 の原料溶液（ケミカル 1 と溶剤を混合したもの）、第 2 の原料溶液用配管 2 の先端から流れ出る第 2 の原料溶液（ケミカル 2 と溶剤を混合したもの）、第 3 の原料溶液用配管 15 の先端から流れ出る第 3 の原料溶液（ケミカル 3 と溶剤を混合したもの）、第 4 の原料溶液用配管 16 の先端から流れ出る第 4 の原料溶液（ケミカル 4 と溶剤を混合したもの）、及びキャリアガス用配管 3 から流れ出るアルゴンガス又は窒素ガスを混合して、アルゴンガス中又は窒素ガス中に第 1 乃至第 3 の原料溶液それぞれを微粒子状又は霧状に分散させるものである。

【0063】

上記実施の形態 3 においても実施の形態 2 と同様の効果を得ることができる。

【0064】

尚、本発明は上述した実施の形態に限定されるものではなく、本発明の主旨を逸脱しない範囲内で種々変更して実施することが可能である。例えば、本発明の CVD 用気化器、

CVD用気化方法及び溶液気化式CVD装置の応用範囲は広く、高速不揮発性メモリであるFeRAM-LSI用の高品質の強誘電体薄膜（例えばSBT、PZT薄膜）の成膜に限られず、様々な蒸気圧が低いケミカルを用いて、YBCO(Super Conductive Oxide)、Thick PZT/PLZT/SBT(Filter, MEMS, Optical Interconnect, HD)、Metal (Ir, Pt, Cu)、Barrier Metal (TiN, TaN)、High k(HfO<sub>x</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, BST etc) 等の薄膜をCVDを用いて形成する事が可能である。

また、上記実施の形態では、Sr[Ta(OEt)<sub>5</sub>(OEtOMe)]<sub>2</sub>を溶剤に溶解した第1の原料溶液とBi(MMP)<sub>3</sub>を溶剤に溶解した第2の原料溶液を用いているが、これらの原料溶液に限定されるものではなく、他の固体材料を溶媒に溶解して作製した原料溶液を用いることも可能である。

#### 【実施例】

##### 【0065】

以下、実施例について説明する。

図2は、実施の形態1によるCVD用気化器を備えた溶液気化式CVD装置を連続運転して20枚のシリコンウエハ上に膜厚が50.9nmのSBT薄膜を同一条件で成膜した実験結果を示す図である。この図によれば、20枚のシリコンウエハ上にSBT薄膜を連続運転して成膜した場合、膜厚のばらつきの無いSBT薄膜を安定して成膜することができると確認された。つまり、実施の形態1によるCVD用気化器では、該気化器内部で目詰まりすることなく20枚のシリコンウエハ上に安定してSBT薄膜を成膜できることが確認できた。

##### 【0066】

図3は、20枚のシリコンウエハ上にSBT薄膜を溶液気化式CVD装置の連続運転で成膜し、各ウエハ上のSBT薄膜中のBi、Ta、Srの組成を測定した実験結果を示す図である。この図によれば、20枚のシリコンウエハ上においてBi、Ta、Srの組成が安定したSBT薄膜を成膜できることが確認された。

##### 【0067】

また、実施の形態1によるCVD用気化器を備えた溶液気化式CVD装置を連続運転してSBT薄膜を段差部上や凹部又は溝部の内部に成膜する実験を行った結果、ステップカバレッジの良いSBT薄膜を成膜できることも確認された。また、SBTの分極現象を用いた高速不揮発性メモリFeRAMを、前記溶液気化式CVD装置を用いて作製する実験を行った結果、SBT薄膜において非常に優れた分極特性が得られることを確認できた。

#### 【図面の簡単な説明】

##### 【0068】

【図1】(a)は本発明の実施の形態1によるCVD用気化器の溶液供給系を模式的に示す構成図であり、(b)は溶液供給系、分散部及び気化部を模式的に示す断面図であり、(c)は実施の形態2によるCVD用気化器の溶液供給系を模式的に示す構成図であり、(d)は実施の形態3によるCVD用気化器の溶液供給系を模式的に示す構成図である。

【図2】実施の形態1によるCVD用気化器を備えた溶液気化式CVD装置を連続運転してSBT薄膜を成膜した実験結果を示す図である。

【図3】SBT薄膜を溶液気化式CVD装置の連続運転で成膜し、SBT薄膜中のBi、Ta、Srの組成を測定した実験結果を示す図である。

【図4】Sr[Ta(OEt)<sub>5</sub>(OEtOMe)]<sub>2</sub>のTG CHART(Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。

【図5】Bi(OtAm)<sub>3</sub>のTG CHART(Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。

【図6】Bi(MMP)<sub>3</sub>のTG CHART(Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。

【図7】Bi(OtAm)<sub>3</sub>/Sr[Ta(OEt)<sub>5</sub>(OEtOMe)]<sub>2</sub>混合体のTG CHART(Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr)を示す図である。

【図8】NMR(Hの核磁気共鳴)特性を示す図である。

【図9】Bi(MMP)<sub>3</sub>/Sr[Ta(OEt)<sub>5</sub>(OEtOMe)]<sub>2</sub>混合体のTG CHART(Ar 760Torr)を示す図

である。

【図 1 0】 BiPh<sub>3</sub> の TG CHART (Ar 760/10Torr, O<sub>2</sub> 760Torr) を示す図である。

【図 1 1】 BiPh<sub>3</sub>/Sr[Ta(OEt)<sub>6</sub>]<sub>2</sub> 混合体の TG CHART (Ar 760, O<sub>2</sub> 760Torr) を示す図である。

【図 1 2】 Mixing Stability of BiPh<sub>3</sub> & Sr[Ta(OEt)<sub>6</sub>]<sub>2</sub> (NMR) 特性を示す図である。

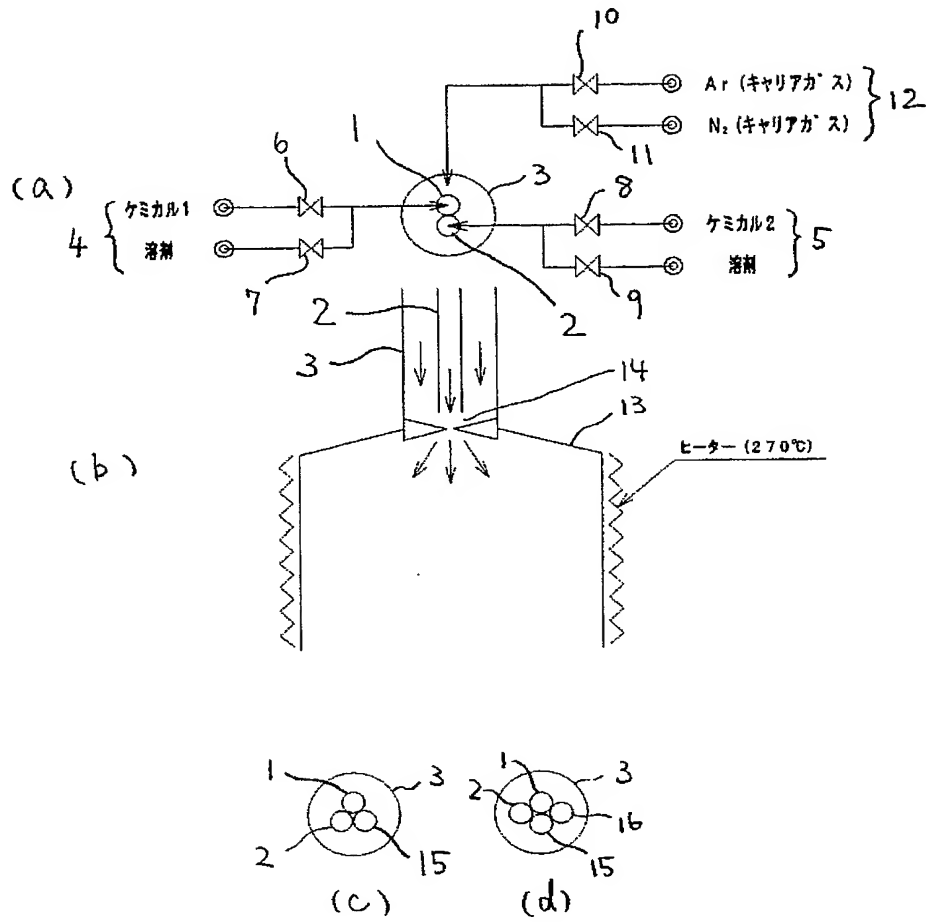
。 【図 1 3】 BiPh<sub>3</sub> TG-DTA CHART (O<sub>2</sub> 760Torr) を示す図である。

【符号の説明】

【0 0 6 9】

- 1 … 第 1 の原料溶液用配管
- 2 … 第 2 の原料溶液用配管
- 3 … キャリアガス用配管
- 4 … 第 1 の供給機構
- 5 … 第 2 の供給機構
- 6 ~ 1 1 … バルブ
- 1 2 … 第 3 の供給機構
- 1 3 … 気化管
- 1 4 … 分散部
- 1 5 … 第 3 の原料溶液用配管
- 1 6 … 第 4 の原料溶液用配管

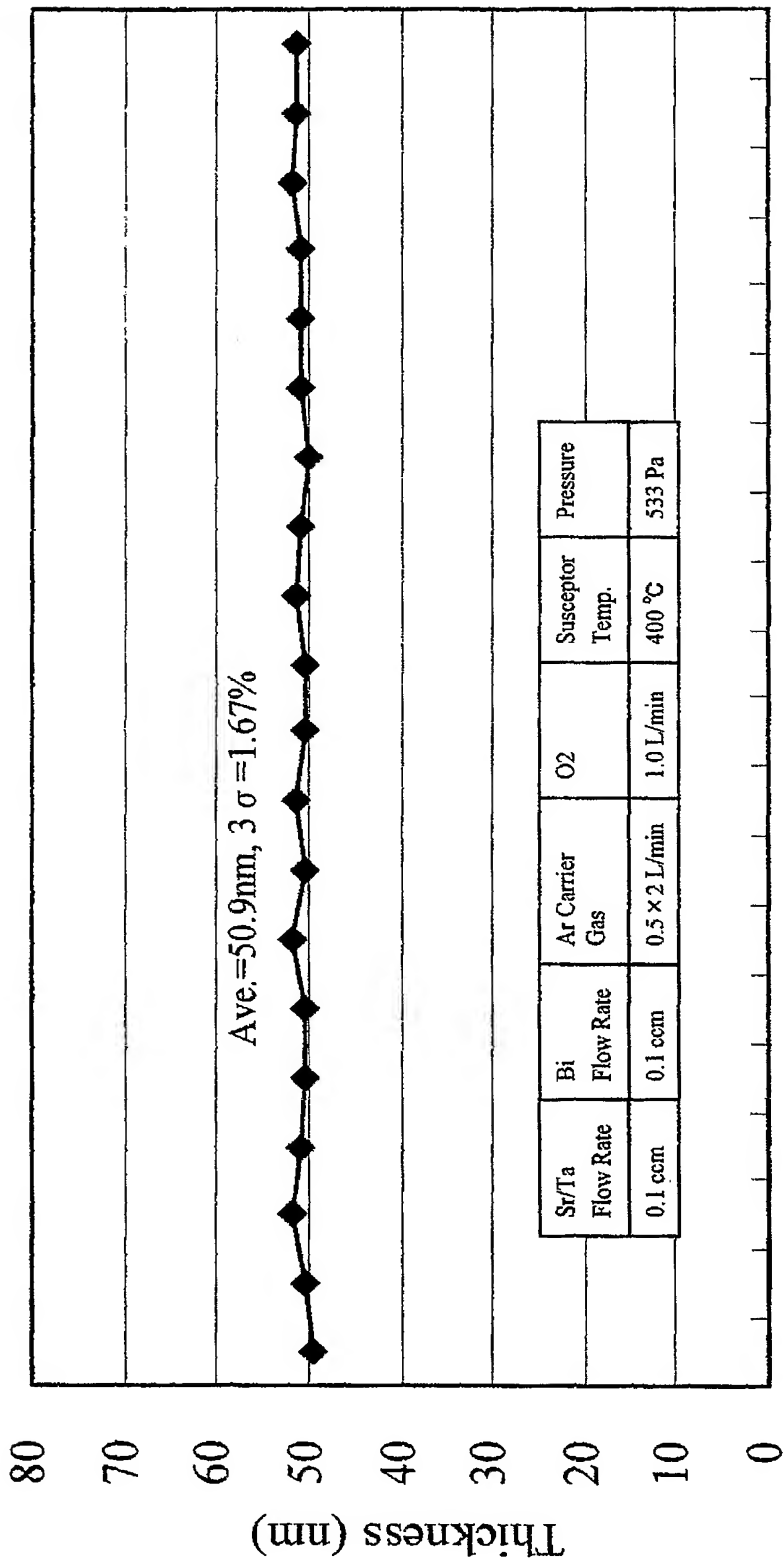
【書類名】 図面  
【図 1】





【図 2】

Continuous Running Test Result (SBT Thickness, Si Wafer)

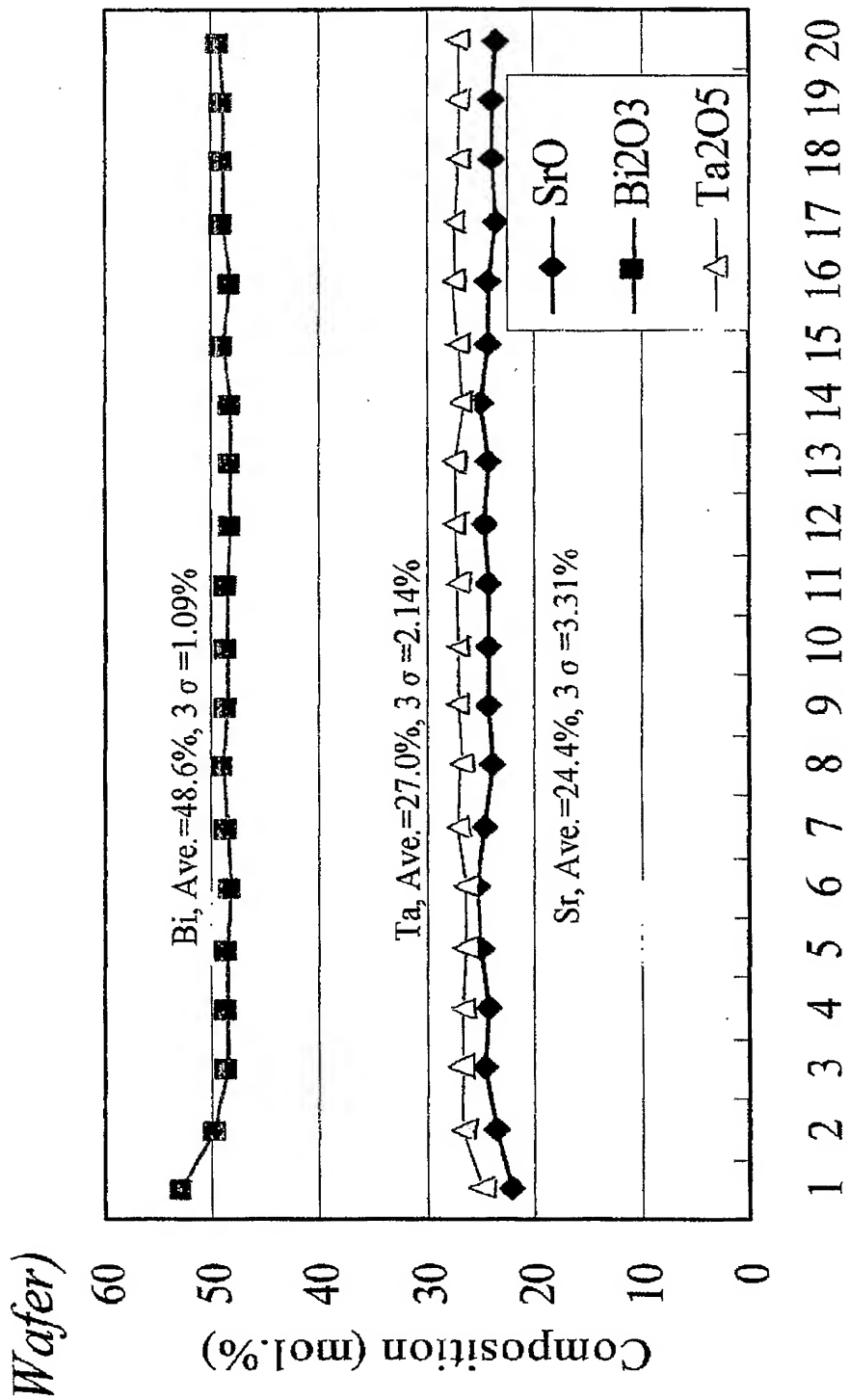


1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19 20

No.

SBT Precursors: Sr[Ta(OEt)<sub>5</sub>(OEtOMe)]<sub>2</sub>/ECH (0.1mol/L), Bi(MMP)<sub>3</sub>/ECH (0.2mol/L)

Continuous Running Test Result (SBT Composition, Si

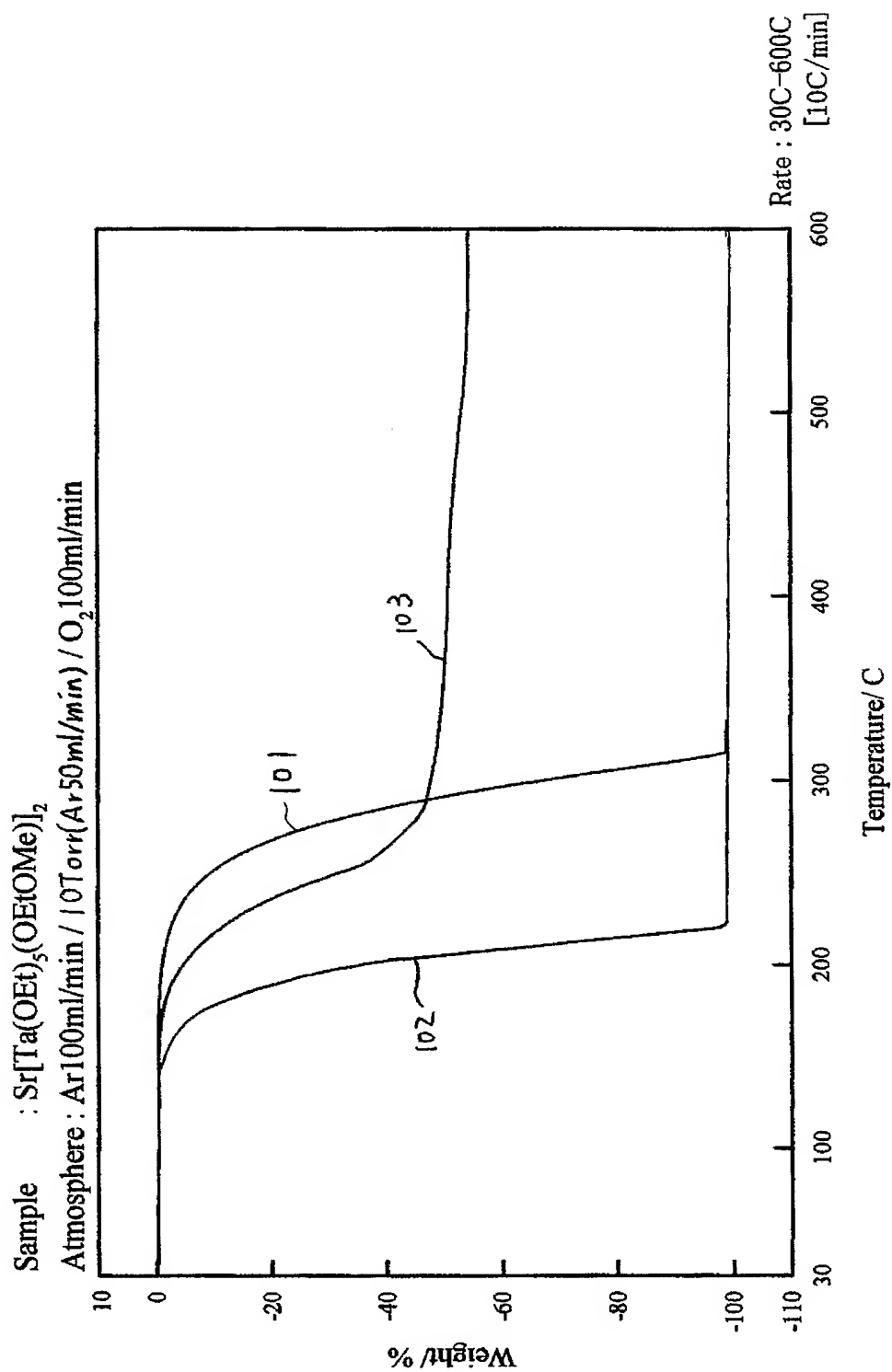


No.

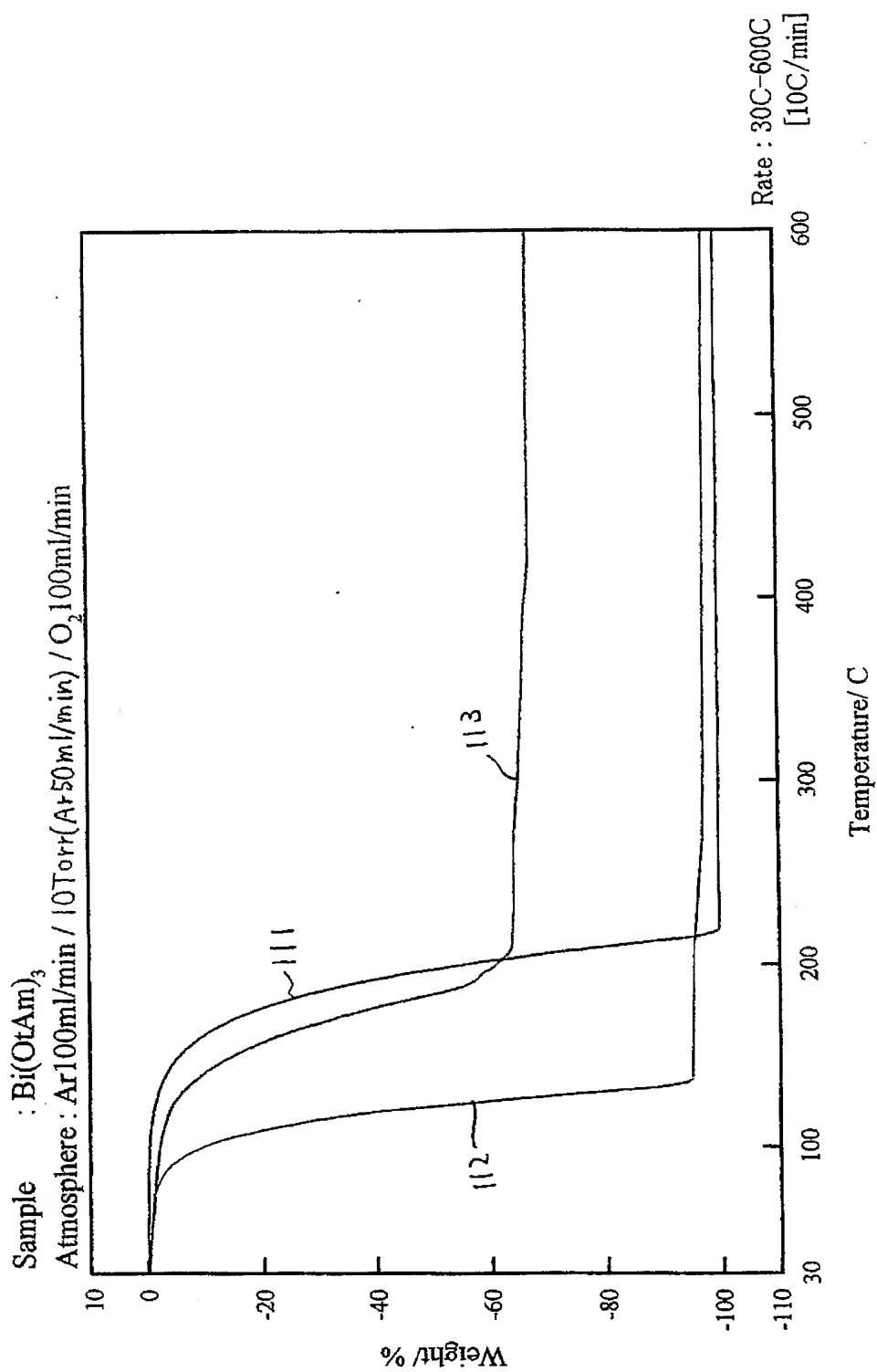
Sr/Ta Flow Rate	Bi Flow Rate	Ar Carrier Gas	O <sub>2</sub>	Susceptor Temp.	Pressure
0.1 ccm	0.1 ccm	1.0 L/min	1.0 L/min	400 °C	533 Pa

SBT Precursors: Sr[Ta(OEt)<sub>5</sub>(OEtOMe)]<sub>2</sub> / ECH (0.1mol/L), Bi(MMP)<sub>3</sub> / ECH (0.2mol/L)

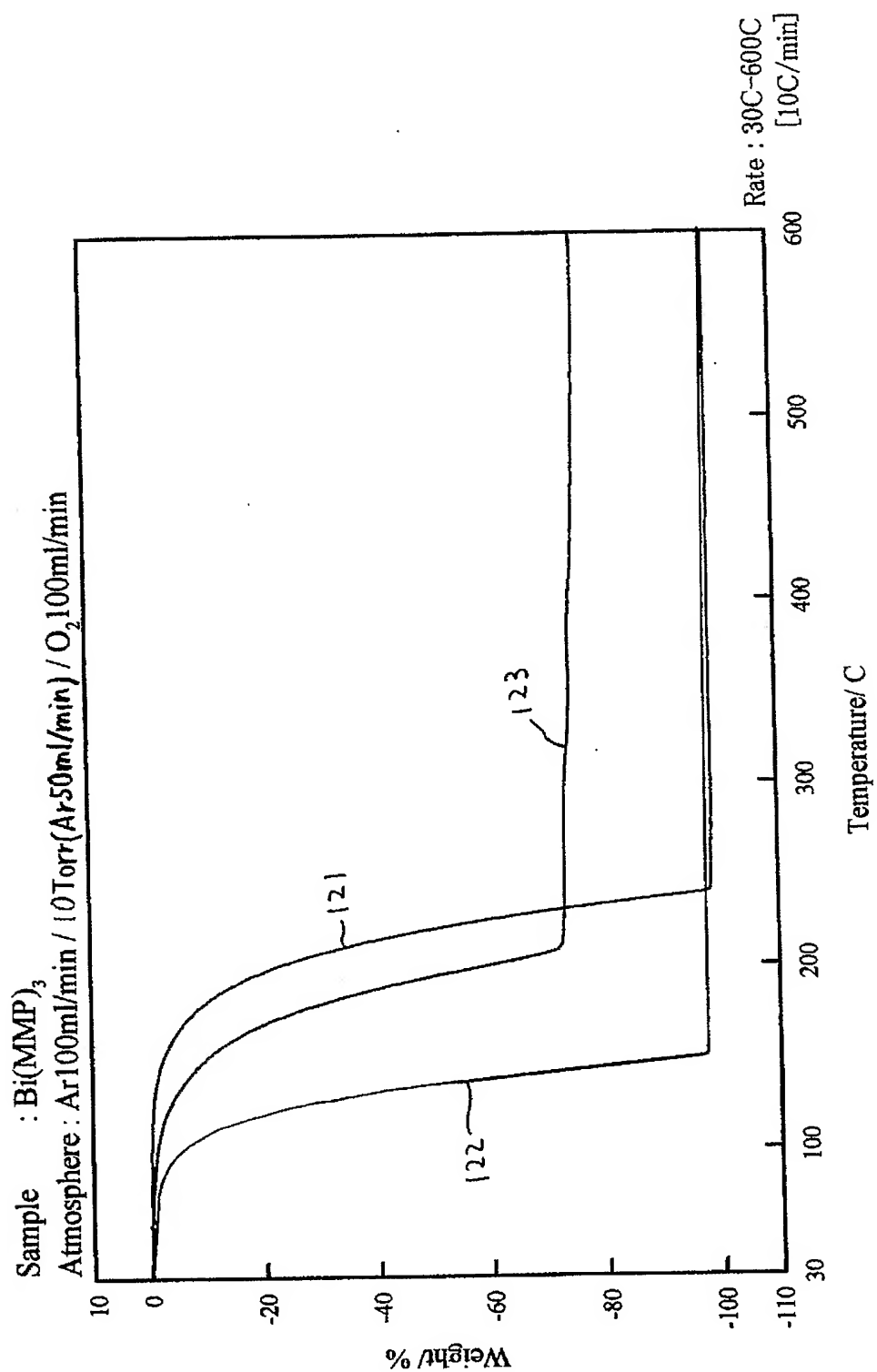
【図 4】



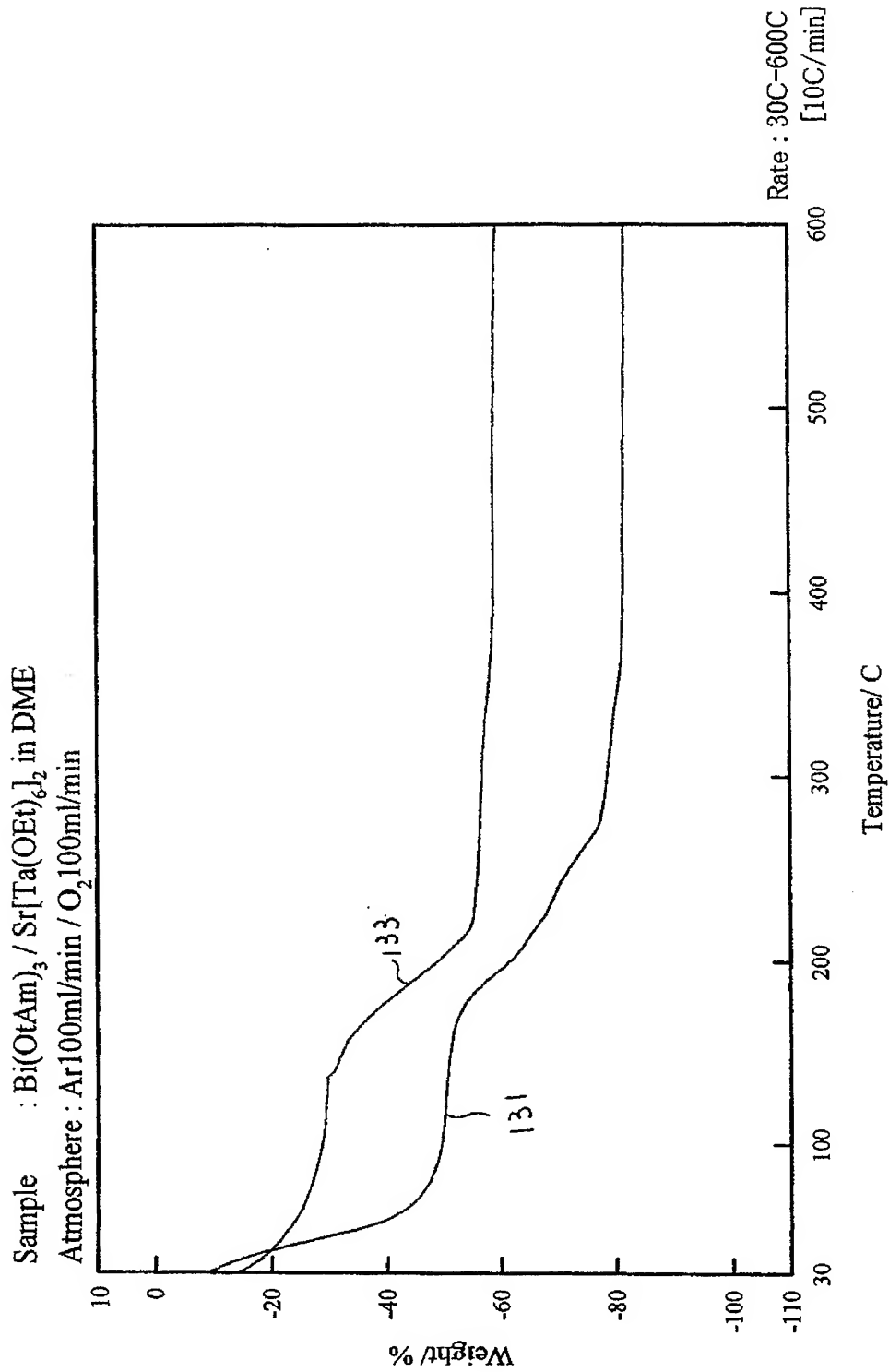
【図 5】



【図 6】

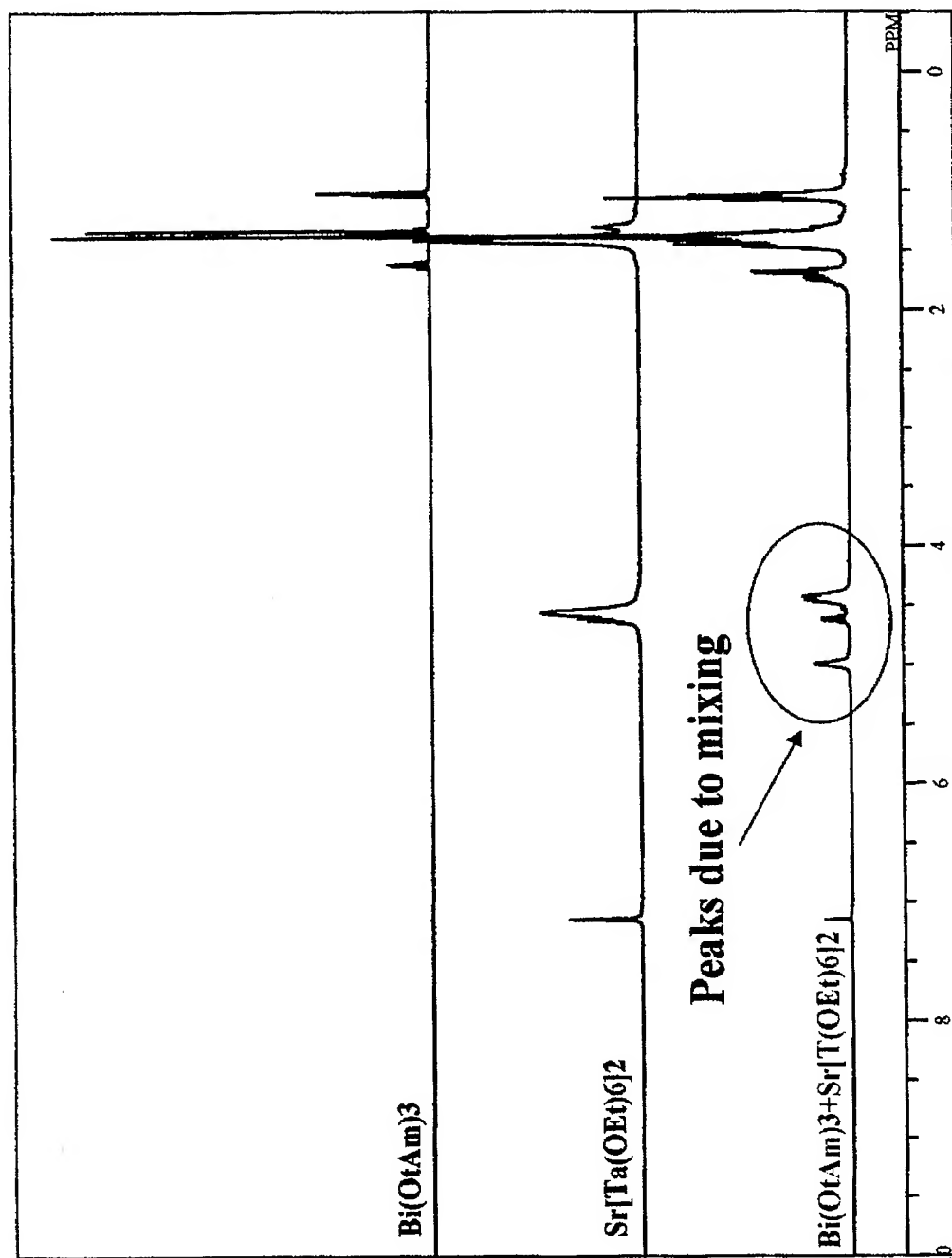


【図 7】

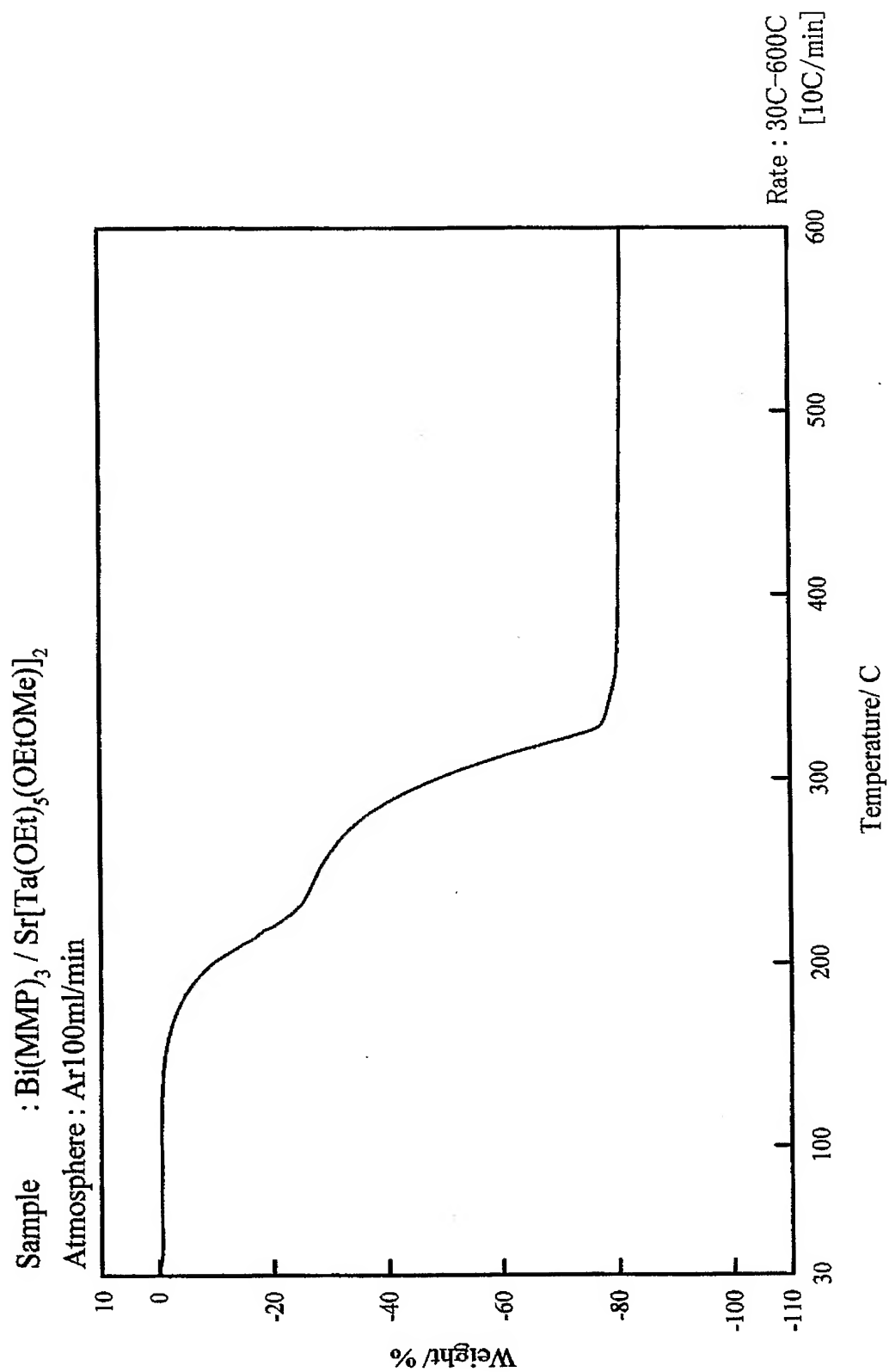


【図 8】

*Mixing Stability of Bi(OtAm)<sub>3</sub> & Sr[Ta(OEt)<sub>6</sub>]<sub>2</sub> (NMR)*

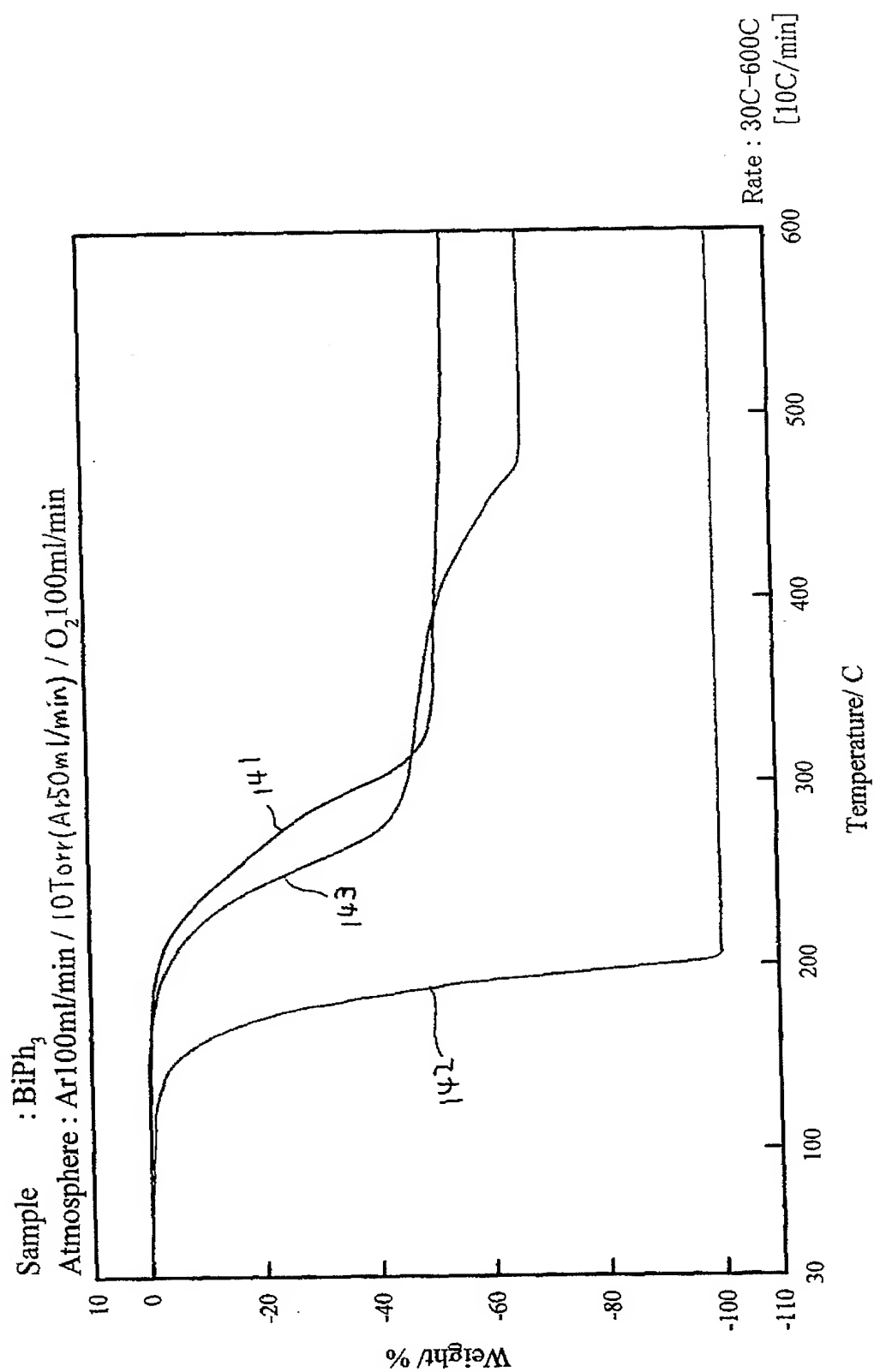


【図 9】

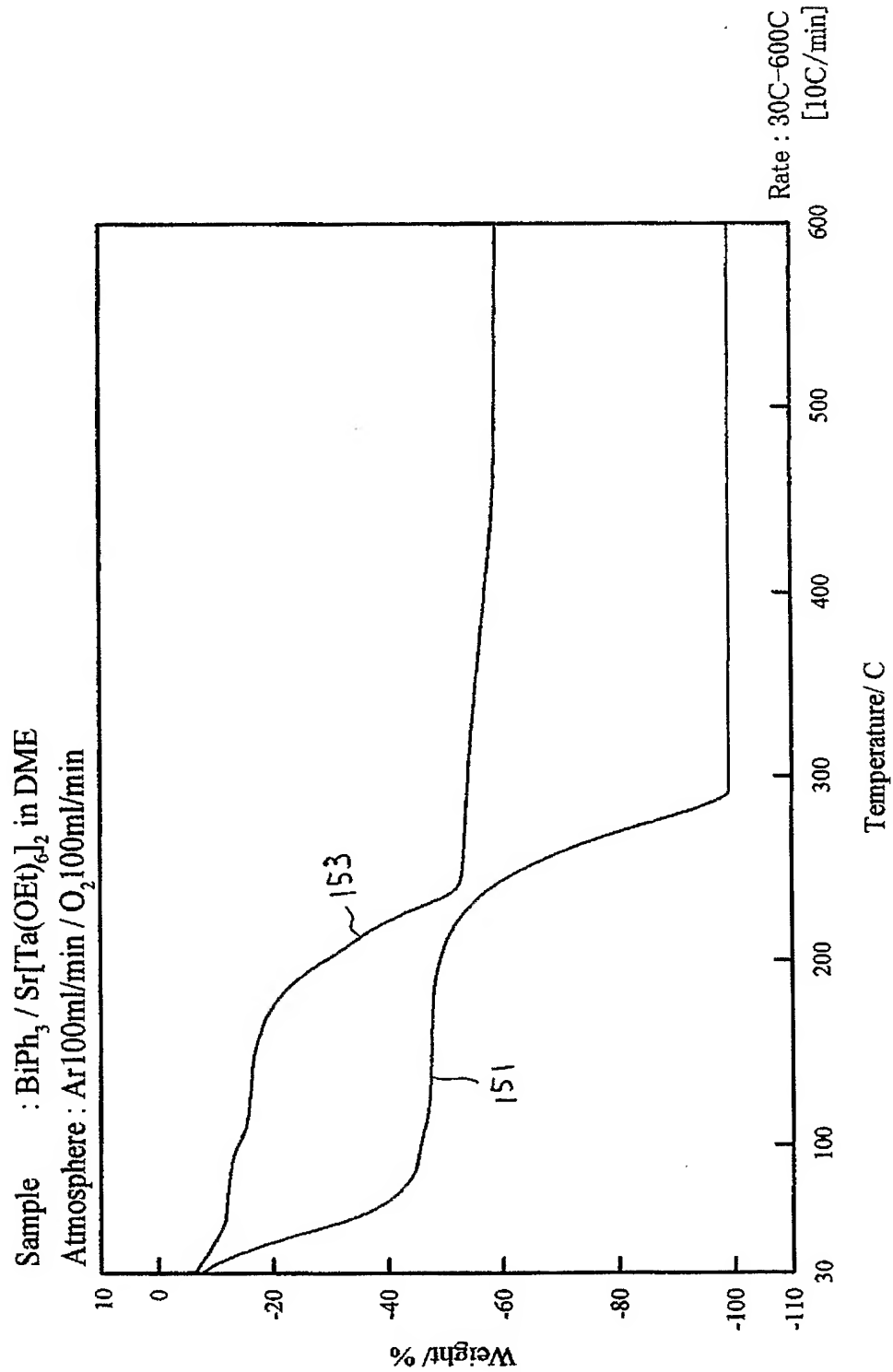




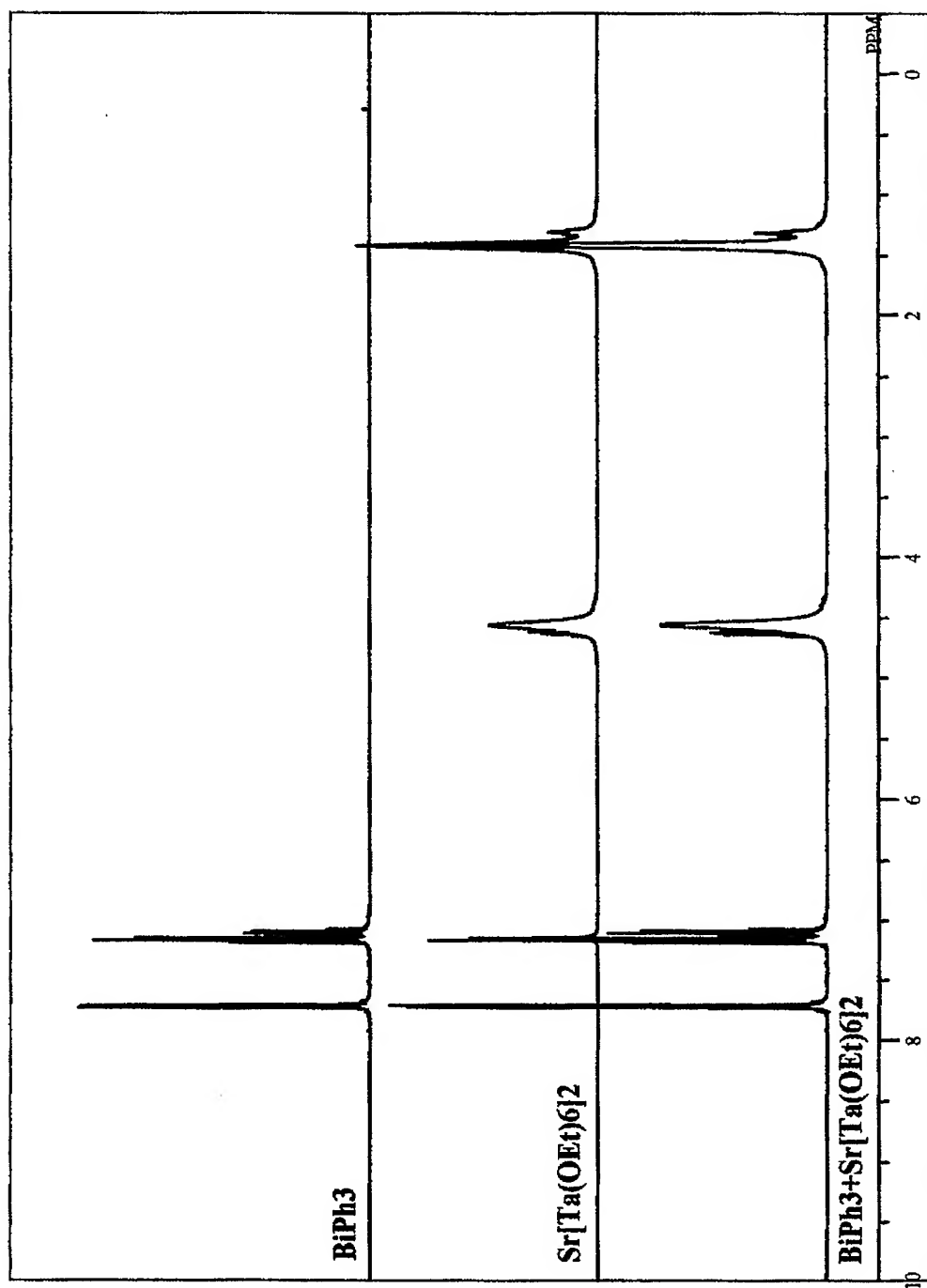
【図 10】



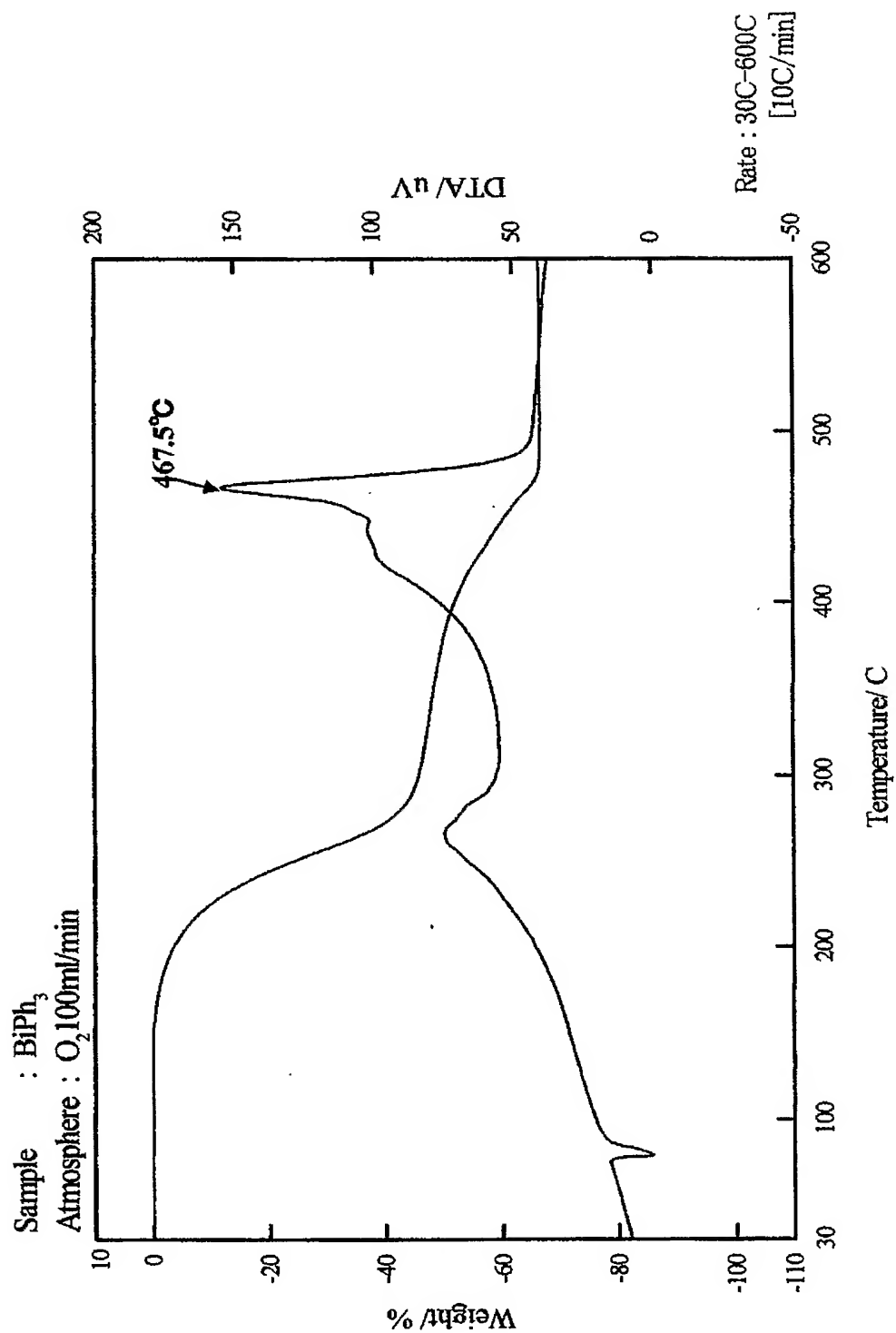
【図 11】



【図 12】



【図 13】



**【書類名】 要約書****【要約】**

**【課題】** 溶液配管等における目詰まりを抑制して連続使用時間を長くしたCVD用気化器、溶液気化式CVD装置及びCVD用気化方法を提供する。

**【解決手段】** 本発明に係るCVD用気化器は、複数の原料溶液を互いに分離して供給する複数の原料溶液用配管1、2と、前記複数の原料溶液用配管1、2の外側を包むように配置され、加圧されたキャリアガスが前記複数の原料溶液用配管1、2それぞれの外側に流されるキャリアガス用配管3と、前記キャリアガス用配管3の先端に設けられ、前記原料溶液用配管1、2の先端から離隔された細孔と、前記キャリアガス用配管3の先端に接続され、前記細孔によって該キャリアガス用配管3の内部に繋げられた気化管13と、前記気化管13を加熱する加熱手段であるヒーターと、を具備することを特徴とする。

**【選択図】** 図1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 4 3 2 5 6 6
受付番号	5 0 3 0 2 1 4 4 6 4 5
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 6 年 1 月 7 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】 平成 15 年 12 月 26 日

特願 2 0 0 3 - 4 3 2 5 6 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 5 9 5 1 5 2 4 3 8 ]

1. 変更年月日	1 9 9 8 年 2 月 1 0 日
[変更理由]	住所変更
住 所	千葉県流山市西平井 9 5 6 番地の 1
氏 名	株式会社ユーテック

特願 2 0 0 3 - 4 3 2 5 6 6

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 5 0 4 0 0 3 7 1 0 ]

1. 変更年月日

2 0 0 3 年 1 2 月 2 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

千葉県流山市大字西平井 9 5 6 番地の 1 株式会社ユーテック  
内

氏 名

矢元 久良